

BEST AVAILABLE COPY

Rec'd PCT/JP 22 SEP 2004

PCT/JP03/03752

日本国特許庁

JAPAN PATENT OFFICE

26.03.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日
Date of Application:

2002年 3月27日

REC'D 23 MAY 2003

WIPO PCT

出願番号
Application Number:

特願2002-089490

[ST.10/C]:

[JP2002-089490]

出願人
Applicant(s):

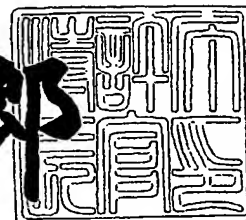
バンドー化学株式会社
城田 靖彦

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 5月 9日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3033315

【書類名】 特許願

【整理番号】 MAC-10943

【提出日】 平成14年 3月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C07C211/54

【発明の名称】 新規な1, 3, 5-トリス(アリアルアミノ)ベンゼン
類

【請求項の数】 2

【発明者】

【住所又は居所】 神戸市兵庫区明和通3丁目2番15号 バンドー化学株
式会社内

【氏名】 赤司 信隆

【発明者】

【住所又は居所】 神戸市兵庫区明和通3丁目2番15号 バンドー化学株
式会社内

【氏名】 則定 英樹

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府豊中市大黒町3丁目5番7号

【氏名】 城田 靖彦

【特許出願人】

【識別番号】 000005061

【氏名又は名称】 バンドー化学株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 592212283

【氏名又は名称】 城田 靖彦

【代理人】

【識別番号】 100079120

【弁理士】

【氏名又は名称】 牧野 逸郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011914

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9719168

【プルーフの要否】 要

【書類名】明細書

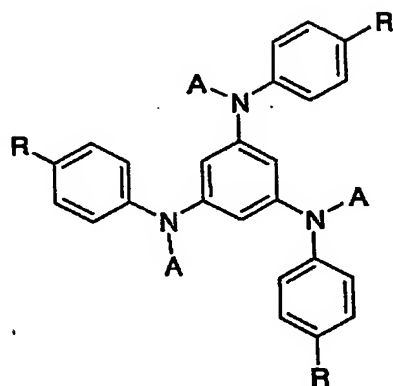
【発明の名称】新規な 1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式（I）

【化 1】



(II)

（式中、Aはナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基を示し、Rは炭素原子数 1～6 のアルキル基又は炭素原子数 5 又は 6 のシクロアルキル基を示す。

）

で表される 1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類。

【請求項 2】

1, 3, 5-トリス（N-（p-メチルフェニル）-N-（1-ナフチル）アミノ）ベンゼン。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、有機半導体として有用である新規な 1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類に関する。詳しくは、本発明は、コーティング法や真空蒸着法にて安定な有機半導体膜に容易に製膜することができると共に、酸化還元過程の可逆性にすぐれるので、例えば、電子写真装置における電荷輸送剤や太陽電池における有機半導体として好適に用いることができる新規で有用な 1, 3, 5-

トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、有機物質のアモルファス膜からなる有機半導体が種々の電子デバイスにおいて用いられている。例えば、特開平11-174707号公報に記載されているように、電子写真装置においては、ポリカーボネート樹脂のようなバインダー樹脂と光・電子変換機能を有するトリフェニルアミン誘導体のような低分子量有機化合物を適宜の有機溶剤に溶解させ、これを塗布し、乾燥させ、有機アモルファス膜とし、これが正孔輸送層として用いられている。また、太陽電池においても、例えば、特開2000-174657号公報に記載されているように、同様に、所謂「スターバースト」(starburst)化合物を適宜の有機溶剤に溶解させ、これを塗布し、乾燥させ、有機アモルファス膜とし、これが有機p型半導体膜として用いられている。

【0003】

従来、このように、光・電子変換機能を有する低分子量有機化合物をバインダー樹脂と共にコーティング組成物とし、これを適宜の基材上に塗布し、乾燥させて、有機アモルファス膜からなる有機半導体膜が形成されている。しかし、従来、知られている多くの低分子量有機化合物は、酸化電位が低いので、上述したように、コーティング法によって有機半導体膜を形成する際に、用いる低分子量有機化合物が酸化されやすく、かくして、製膜が容易でなく、また、酸化還元過程における可逆性が十分でないので、耐久性にすぐれる実用的な有機半導体膜を形成し難い問題がある。更に、得られる有機半導体膜が耐熱性において十分でないので、それを利用した電子デバイスは安定性や耐久性に劣る問題がある。

【0004】

他方、従来、このように、有機アモルファス膜を形成するための光・電子変換機能を有する低分子量有機化合物としては、代表的には、例えば、N, N, N', N' - テトラメチルベンジジン、N, N, N', N' - テトラフェニルー (1, 1' - ビフェニル) - 4, 4' - ジアミン、N, N' - ジエチルー N, N' - ジフェニルー (1, 1' - ビフェニル) - 4, 4' - ジアミン、N, N, N',

N'-テトラ(3-メチルフェニル)-4,4'-ジアミノスチルベン等が知られているが、しかし、これらの低分子量有機化合物は、これらを有機感光体において、電荷輸送剤として用いるには、それら自体では、アモルファス膜の安定性に劣るので、上述したように、高分子量の樹脂をバインダーとして用い、これに溶解させ、又は分散させて(即ち、希釈した状態で)、基材上に塗布することによって、有機アモルファス膜が形成されている。

【0005】

このように、従来の有機アモルファス膜によれば、光・電子変換機能を有する低分子量有機化合物は、マトリックスであるバインダー樹脂の影響を受けると共に、希釈されているので、その本来の特性を十分に発揮することができない。更に、従来のそのような低分子量有機化合物は、バインダーの助けを借りて、常温で比較的安定なアモルファス膜を形成することができても、ガラス転移温度が低く、耐熱性に劣るので、得られる電子デバイスが安定性や寿命において問題がある。

【0006】

そこで、近年、光・電子変換機能を有する低分子量有機化合物として、常温以上の温度でそれ自体でアモルファス膜を形成することができる低分子量有機化合物の開発が進められており、所謂「スターバースト」分子群と呼ばれる種々の含窒素多核芳香族化合物がそのような材料として有用であるとして、提案されている。

【0007】

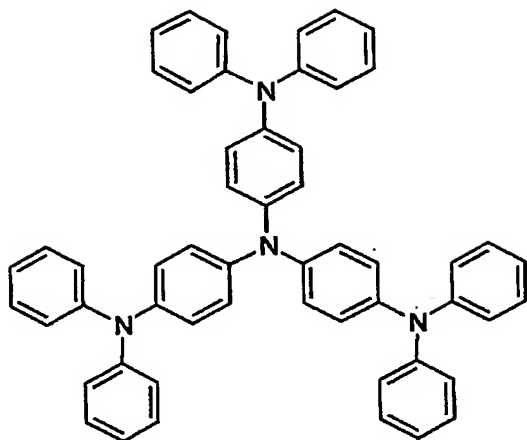
このようなスターバースト分子群は、その分子構造から三つの群、即ち、トリフェニルアミン骨格を有するもの(トリフェニルアミン類)とトリアミノベンゼン骨格を有するもの(トリアミノベンゼン類)とトリフェニルベンゼン骨格を有するもの(トリフェニルベンゼン類)に大別される。これら以外にトリフェニルメタン骨格を有するものも提案されている。

【0008】

これらのうち、トリフェニルアミン類としては、例えば、4,4',4"-トリス(N,N-ジフェニルアミノ)トリフェニルアミン(TDATA)(1)

【0009】

【化2】



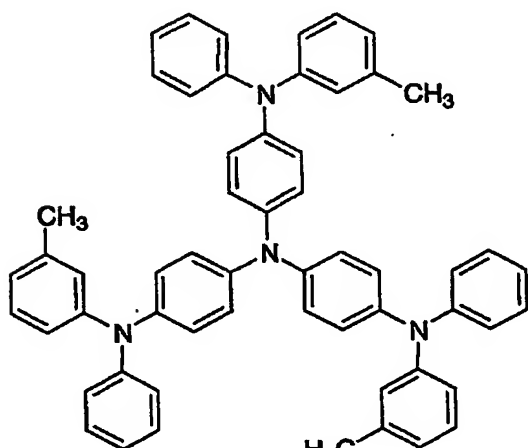
(1)

【0010】

(特開平1-224353号公報)や4, 4', 4''-トリス(N-フェニル-N-m-トリルアミノ)トリフェニルアミン(m-MTDATA) (2)

【0011】

【化3】



(2)

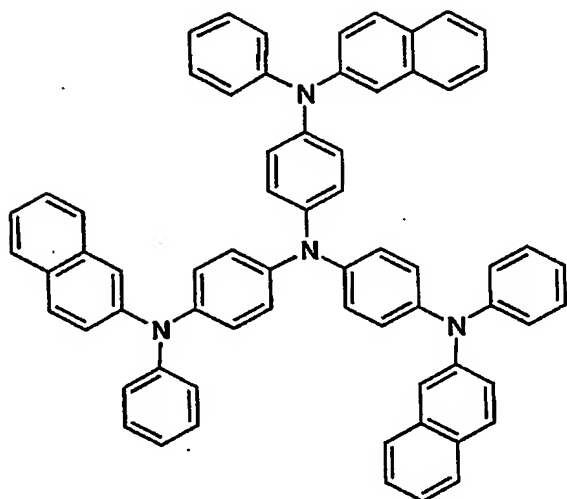
【0012】

(特開平1-224353号公報)、4, 4', 4''-トリス(N-(2-ナフ

チル) -N-フェニルアミノ) トリフェニルアミン (2-TNATA) (3)

【0013】

【化4】



(3)

【0014】

(特開平8-291115号公報)、4, 4', 4''-トリス (N-(1-ナフチル) -N-フェニルアミノ) トリフェニルアミン (1-TNATA) 等が知られている。

【0015】

このようなトリフェニルアミン類は、酸化還元過程は可逆的であるが、しかし、酸化電位 (Ag/Ag^+ 電極に対する酸化電位、以下、同じ。) が約0.1V 又はそれよりも小さいので、上述したように、コーティング法によって有機半導体膜を製膜する際に、容易に酸化される問題がある。

【0016】

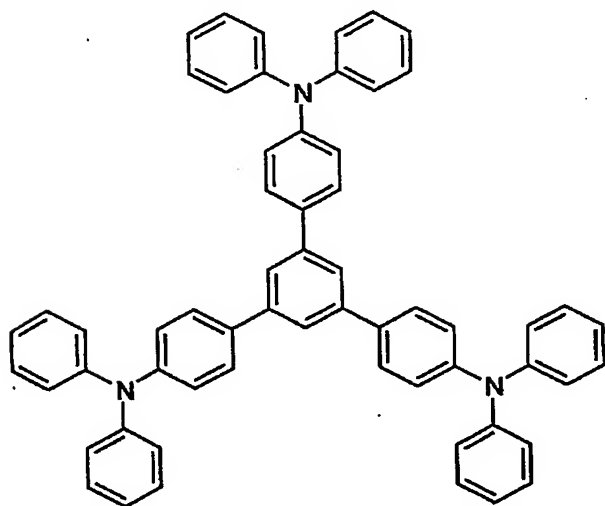
また、m-MTDATAは、ガラス転移温度が約77℃であり、実用的な電子デバイスに用いるには、耐熱性に難があり、2-又は1-TNATAは、110℃前後のガラス転移温度を有し、耐熱性にすぐれた有機アモルファス膜を形成するが、比較的結晶しやすい性質を有しているので、アモルファス膜が安定性や寿命に欠ける問題がある。

【0017】

トリフェニルベンゼン類としては、例えば、1, 3, 5-トリス (4-N, N-ジフェニルアミノフェニル) ベンゼン (TDAPB) (4)

【0018】

【化5】



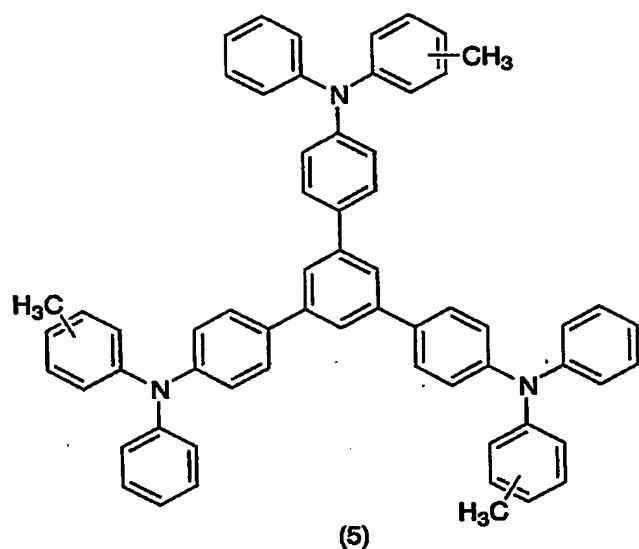
(4)

【0019】

や1, 3, 5-トリス (4-(N-トリル-N-フェニルアミノフェニル) ベンゼン (MTDAPB) (5)

【0020】

【化 6】



【0021】

が知られている（「バンドー・テクニカル・レポート」、第2号、第9～18頁（1998年））。

【0022】

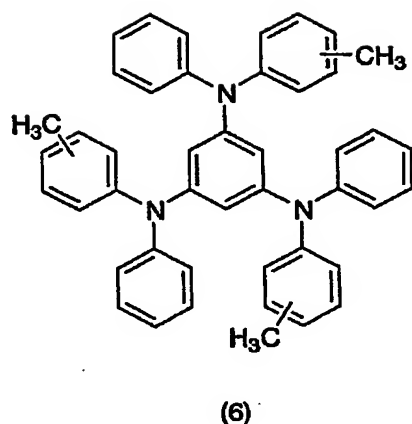
このようなトリフェニルベンゼン類は、アモルファス膜を形成し、また、0.6～0.7Vの範囲の酸化電位を有するが、酸化還元過程が不可逆的であるので、実用的な有機半導体として用いるに適しない。

【0023】

トリアミノベンゼン類としては、例えば、1, 3, 5-トリス（N-メチルフェニル-N-フェニルアミノ）ベンゼン（6）（MTDAB）

【0024】

【化 7】



【0025】

等が知られている（「バンドー・テクニカル・レポート」、第2号、第9～18頁（1998年））。

【0026】

このようなトリアミノベンゼン類も、0.5～0.6V程度の酸化電位を有するが、しかし、上記トリフェニルベンゼン類と同様に、いずれも酸化還元過程が不可逆的であり、更に、ガラス転移温度が約60℃又はそれより低い。従って、実用的な有機半導体として用いるには適しないし、更に、耐熱性の点でも問題がある。

【0027】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、従来の有機半導体材料としてのトリアミノベンゼン骨格を有するスターバースト分子におけるこのような問題を解決するためになされたものであって、酸化電位が0.5～0.6V程度であり、酸化還元過程における可逆性にすぐれると共に、高いガラス転移温度を有し、更に、耐熱性にもすぐれるので、コーティング法や真空蒸着法によって、実用性にすぐれる有機半導体膜を容易に製膜することができ、しかも、常温以上の温度で自体で、即ち、バインダー樹脂の助けなしに、安定なアモルファス膜を形成することができるので、それ自体からなる安定で耐久性にすぐれる高性能な有機半導体膜を形成することができる新規

な 1, 3, 5-トリス (アリアルアミノ) ベンゼン類を提供することを目的とする。

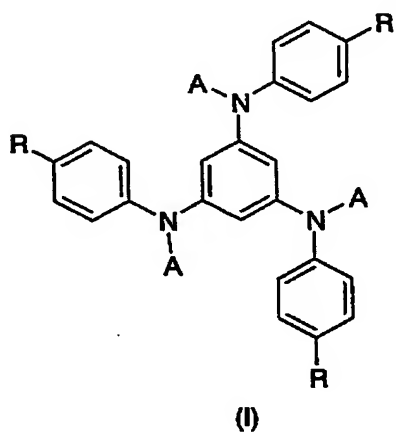
【0028】

【課題を解決するための手段】

本発明によれば、一般式 (I)

【0029】

【化 8】



【0030】

(式中、Aはナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基を示し、Rは炭素原子数1～6のアルキル基又は炭素原子数5又は6のシクロアルキル基を示す。)

で表される 1, 3, 5-トリス (アリアルアミノ) ベンゼン類が提供される。

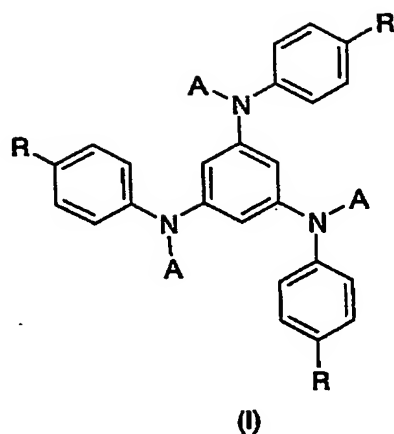
【0031】

【発明の実施の形態】

本発明による 1, 3, 5-トリス (アリアルアミノ) ベンゼン類は、一般式 (I)

【0032】

【化9】



【0033】

で表され、Aはナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基であり、詳しくは、1-又は2-ナフチル基、1-、2-又は9-アントリル基、1-、2-、3-、4-又は9-フェナントリル基であり、これらのうち、ナフチル基又はフェナントリル基が好ましい。

【0034】

本発明によれば、このようなナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基は、1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類の酸化電位、酸化還元過程の可逆性、ガラス転移温度等に有害な影響を与えない置換基を有していてもよい。そのような置換基としては、例えば、アルキル基、アルコキシル、アリーロキシ基、アラルキル基、アルキルアリアル基、第1級、第2級又は第3級アミノ基、ニトロ基、シアノ基、ハロゲン原子等を挙げることができる。しかし、本発明による1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類において、Aは、好ましくは、ナフチル基である。

【0035】

また、上記一般式（I）で表される1, 3, 5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類において、Rは炭素原子数1～6のアルキル基又は炭素原子数5又は6のシクロアルキル基であり、詳しくは、上記アルキル基はメチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基又はヘキシル基であり、炭素原子数が3以上のアルキル

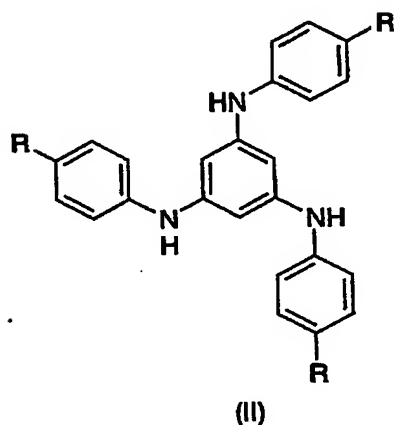
基は直鎖状でも分岐鎖状でもよく、また、上記シクロアルキル基はシクロペンチル基又はシクロヘキシル基である。しかし、本発明において、Rは、好ましくは、メチル基である。

【0036】

本発明による1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、一般式(II)

【0037】

【化10】



【0038】

(式中、Rは前記と同じである。)

で表される1, 3, 5-トリス(p-アルキルフェニルアミノ)ベンゼン類に、目的とする1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類に応じて、一般式(III)

【0039】

【化11】

A-X

(III)

【0040】

(式中、Aは前記と同じであり、Xはハロゲン原子を示す。)

で表されるハロゲン化アリールを、例えば、18-クラウン-6(1, 4, 7,

10, 13, 16-ヘキサオキサシクロオクタデカン) のようなクラウンエーテルを触媒として用いて、塩基と銅粉との存在下、窒素、アルゴン、ヘリウム等のような不活性ガス雰囲気下に、必要に応じて、反応溶剤中で反応させることによって得ることができる。

【0041】

上記ハロゲン化アリールとしては、例えば、ヨウ化物や臭化物が好ましく用いられるが、必要に応じて、塩化物も用いられる。例えば、1, 3, 5-トリス(N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(p-MTPNAB)を得る場合には、上記ハロゲン化アリールとして、1-ヨードナフタレンが用いられる。

【0042】

このようなハロゲン化アリールは、1, 3, 5-トリス(p-アルキルフェニルアミノ)ベンゼン類に対して過剰量が用いられ、好ましくは、1, 3, 5-トリス(p-アルキルフェニルアミノ)ベンゼン類1モル部に対して3モル部以上、好ましくは、3~10モル部、特に好ましくは、3.5~5モル部が用いられる。

【0043】

塩基としては、水酸化カリウムのようなアルカリ金属の水酸化物や、アルカリ金属の炭酸塩や炭酸水素塩等が用いられるが、特に、ナトリウムやカリウムの炭酸塩又は炭酸水素塩が好ましく用いられ、なかでも、炭酸カリウムが好ましく用いられる。また、上記反応溶剤としては、反応を阻害しない限りは、特に限定されるものではないが、通常、デカリン、メシチレン、ヘプタン等のような炭化水素溶媒が好ましく用いられる。反応温度は、特に、限定されるものではないが、通常、140~190℃の範囲であり、反応時間は、通常、5~30時間の範囲である。

【0044】

反応終了後、反応生成物を有機溶媒に溶解させ、触媒を濾別し、次いで、適宜の溶出液を用いて反応生成物をカラム・クロマトグラフィーにて分離精製することによって、高純度品を高収率にて得ることができる。

【0045】

本発明による1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、酸化電位が約0.5~0.6Vの範囲にあり、構造的には、第1に、窒素原子の一方の置換基がp-アルキルフェニル基であり、これによって、この化合物の反応活性点を覆い隠し、かくして、酸化還元反応における可逆性を確保することができ、第2には、窒素原子の他方の置換基がナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基であって、これによって、ガラス転移温度を高め、すぐれた耐熱性を有せしめることができ、更に、酸化還元反応における可逆性も向上させることができる。

【0046】

かくして、本発明による1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、コーティング法や真空蒸着法による有機半導体膜の形成に好適に用いることができ、しかも、得られる有機半導体膜は安定性と耐熱性にすぐれる。更に、本発明による1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、常温以上の温度でそれ自体でアモルファス膜を形成することができるので、それ自体で高性能で耐久性にすぐれる有機半導体膜を形成することができる。

【0047】

従って、本発明による1, 3, 5-トリス(アリールアミノ)ベンゼン類は、何ら限定されるものではないが、種々の電子デバイス、例えば、電子写真装置における電荷輸送剤や太陽電池における有機半導体として好適に用いることができる。

【0048】

【実施例】

以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。

【0049】

実施例1

(1, 3, 5-トリス(p-トルイルアミノ)ベンゼンの製造)

フロログルシノール11.8g、p-トルイジン50g及びヨウ素0.5gを

300 mL容量三口フラスコに仕込み、窒素雰囲気下に150℃で15時間加熱攪拌して反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をメタノール、ヘキサン、メタノールの順序で洗浄し、乾燥させて、やや赤みがかった固体として、目的とする1, 3, 5-トリス(N-(p-トルイルアミノ)ベンゼン)31.9 gを得た。収率は86.5%であった。

【0050】

(1, 3, 5-トリス(N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(p-MTPNAB)の製造)

1, 3, 5-トリス(N-(p-トルイルアミノ)ベンゼン)2.0 g、1-ヨードナフタレン6.4 g、炭酸カリウム6.9 g、銅粉1 g及び18-クラウン-6(1, 4, 7, 10, 13, 16-ヘキサオキサシクロオクタデカン)0.7 gを反応溶剤メシチレン15 mLと共に100 mL容量ガラスフラスコに仕込み、窒素雰囲気下に170℃で18時間反応させた。反応終了後、得られた反応混合物をトルエン抽出し、このトルエン溶液をシリカゲルクロマトグラフィーに付して、反応生成物を分取した。この反応生成物を再結晶にて精製した後、昇華精製して、目的とする1, 3, 5-トリス(N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル)アミノ)ベンゼン(p-MTPNAB)2.2 gを得た。収率は57%であった。

【0051】

元素分析値(%) :

| | C | H | N |
|-----|-------|------|------|
| 計算値 | 88.68 | 5.88 | 5.44 |
| 測定値 | 88.58 | 6.00 | 5.43 |

【0052】

質量分析 :

$$M^+ = 771$$

赤外線吸収スペクトル :

図1に示す。

示差走査熱量測定(DSC) :

試料として p-MTPNAB 約 5 mg を秤量し、示差走査熱量測定装置中で一度融解させた後、50℃/分の速度で室温まで冷却したが、試料は結晶化せず、アモルファスなガラス状となった。引き続き、アルミニウム板を参照として、昇温速度 5℃/分で熱特性を測定した。DSC チャートを図 2 に示すように、ガラス転移点 (T_g) は 87℃、結晶化温度は 167℃であった。

【0053】

サイクリックボルタンメトリー (CV) :

p-MTPNAB をジクロロメタンに溶解させて、 10^{-3} M 濃度に調整した。支持電解質として、過塩素酸テトラブチルアンモニウム ($(n-C_4H_9)_4NClO_4$ (0.1M)) を用い、参照電極として Ag/Ag^+ を用いて、スキャン速度 50 mV/秒にて酸化還元特性を測定した。図 3 にサイクリックボルタモグラムの示すように、酸化電位は 0.6 V (vs Ag/Ag^+) であり、50 回の繰返し測定において、酸化還元過程に可逆性を有し、有機正孔輸送剤として好適に用いることができることが確認された。

蛍光スペクトル :

【0054】

真空蒸着装置を用いて、厚み 500 Å の蒸着膜 (アモルファス膜) を製膜し、これについて、320 nm の波長の励起光を用いて蛍光スペクトルを測定した。図 4 に示すように、435.4 nm に発光ピークを有する。

【0055】

【発明の効果】

本発明によって、新規な 1, 3, 5-トリス (アリールアミノ) ベンゼン類が提供される。このような 1, 3, 5-トリス (アリールアミノ) ベンゼン類は、酸化電位が約 0.5~0.6 V の範囲にあり、酸化還元過程においてすぐれた可逆性を有すると共に、ガラス転移温度が高く、すぐれた耐熱性を有し、かくして、コーティング法や真空蒸着法によって有機半導体や正孔輸送剤として好適なアモルファス膜に容易に製膜することができ、更に、本発明による 1, 3, 5-トリス (アリールアミノ) ベンゼン類は、常温以上の温度でそれ自体でアモルファス膜を形成することができるので、有機アモルファス材料として広い用途に好適

に用いることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明による 1, 3, 5-トリス (N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル) アミノ) ベンゼン (p-MTPNAB) の赤外線吸収スペクトルである。

【図 2】

本発明による 1, 3, 5-トリス (N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル) アミノ) ベンゼン (p-MTPNAB) の示差走査熱量測定 (DSC) 曲線である。

【図 3】

本発明による 1, 3, 5-トリス (N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル) アミノ) ベンゼン (p-MTPNAB) のサイクリックボルタモグラムである。

【図 4】

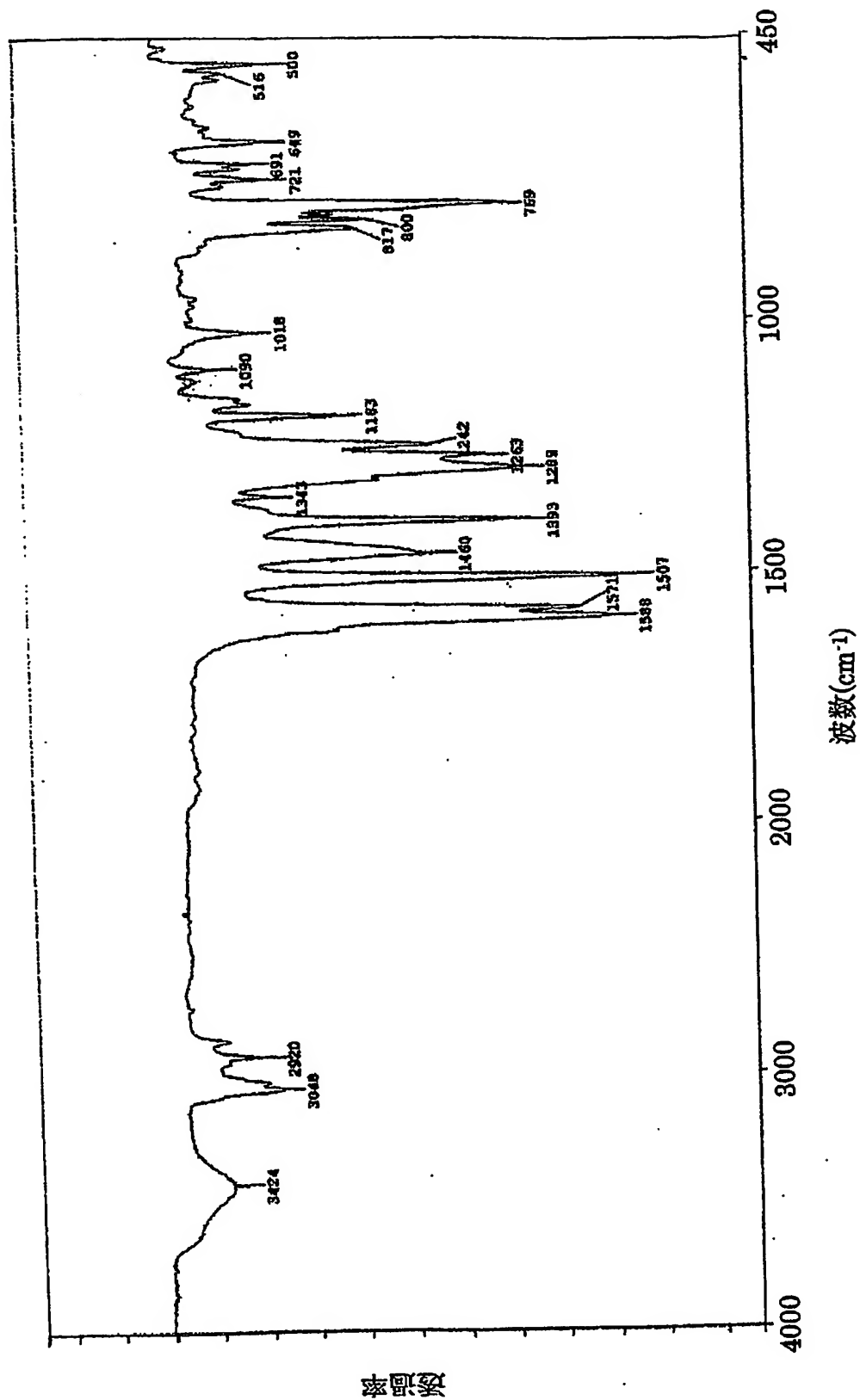
本発明による 1, 3, 5-トリス (N-(p-メチルフェニル)-N-(1-ナフチル) アミノ) ベンゼン (p-MTPNAB) の蛍光スペクトルである。

特 2002-089490

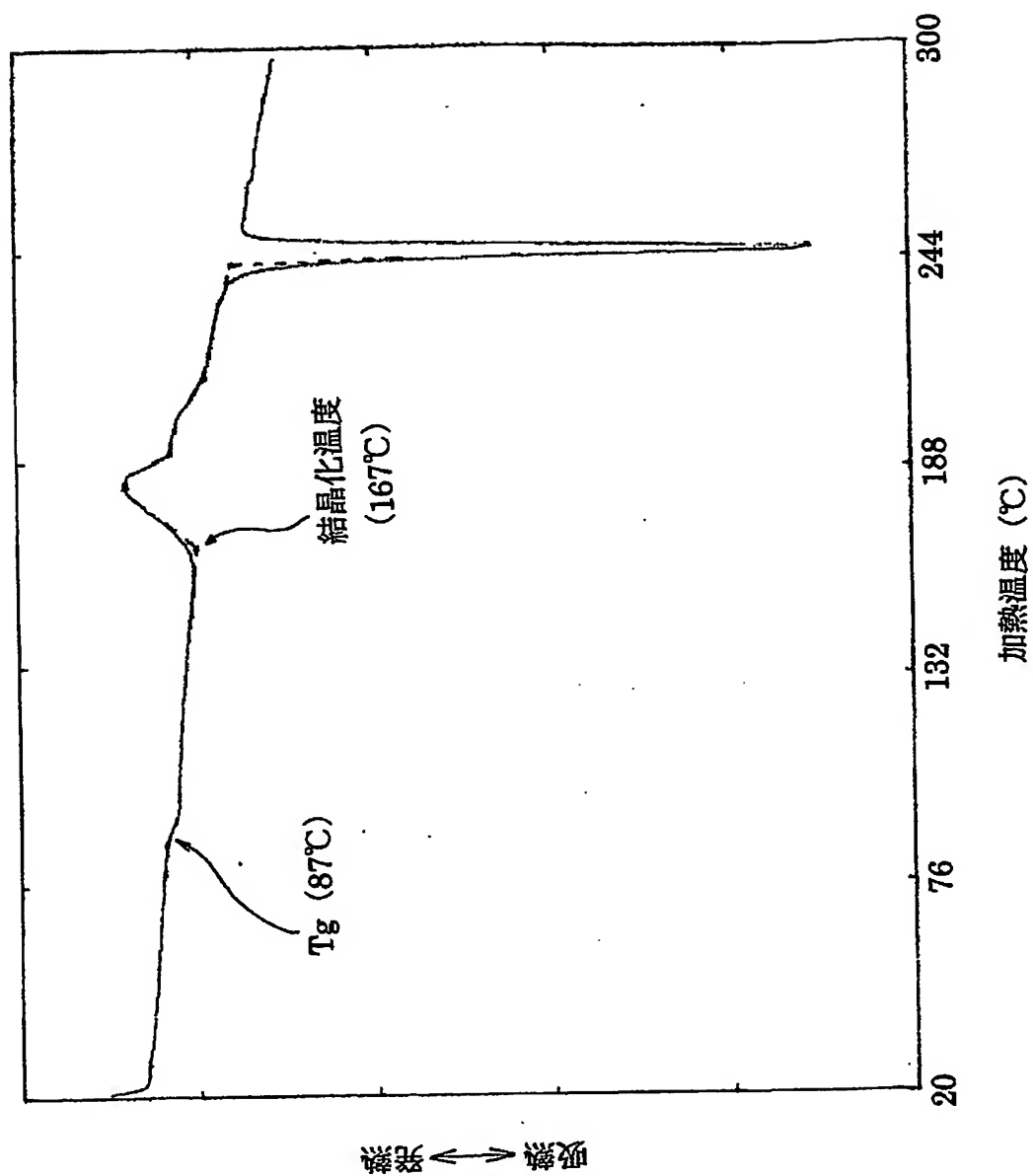
【書類名】

図面

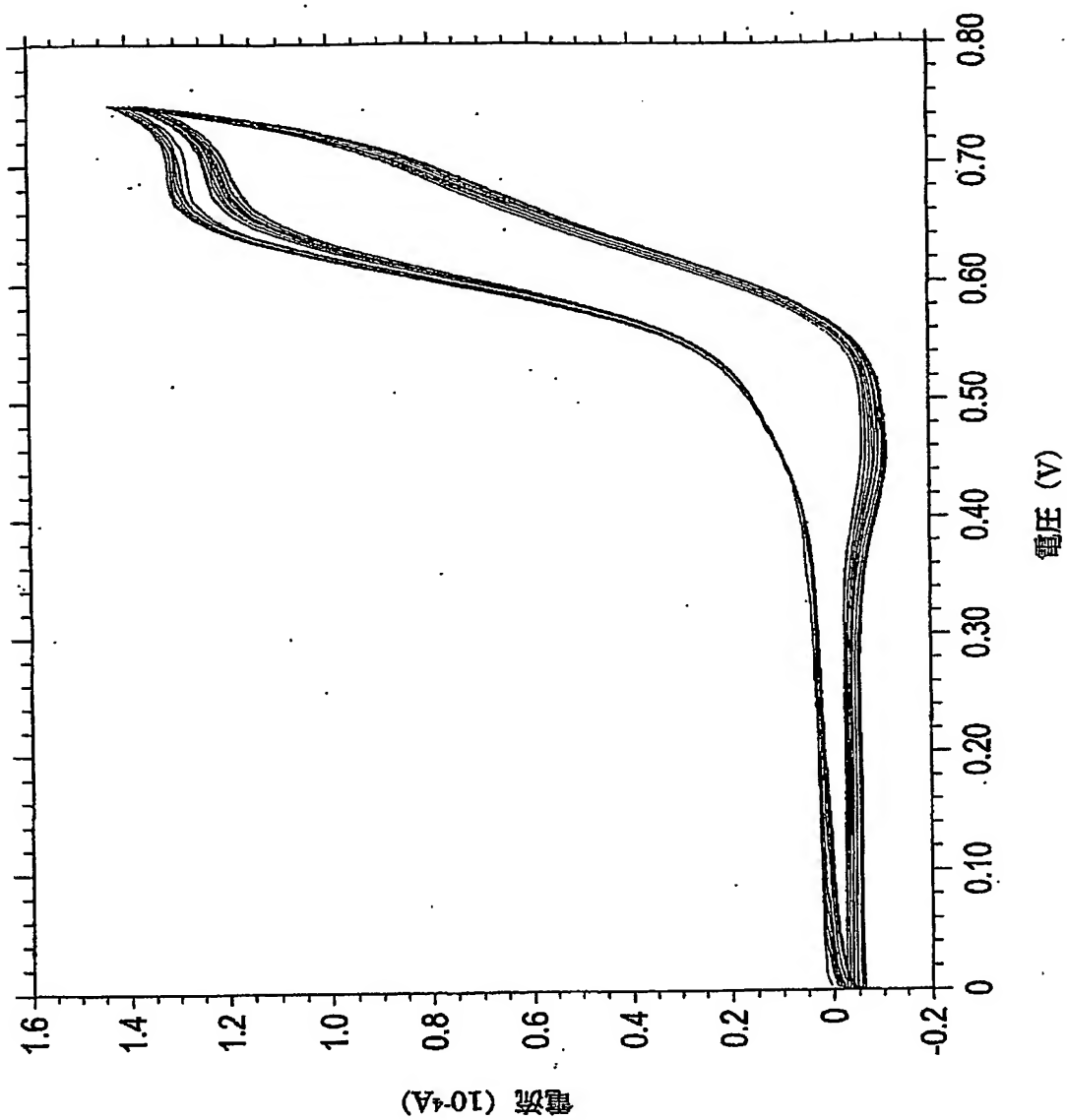
【図 1】



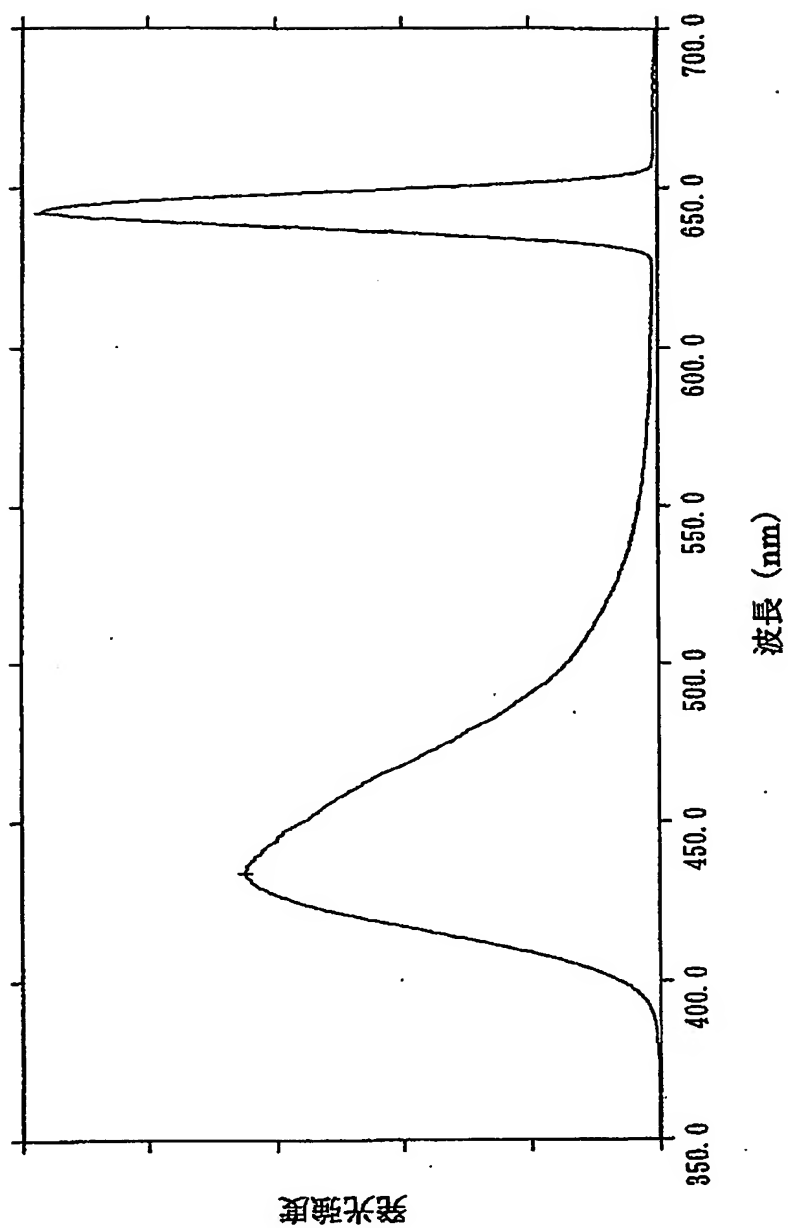
【図2】



【図3】



【図4】



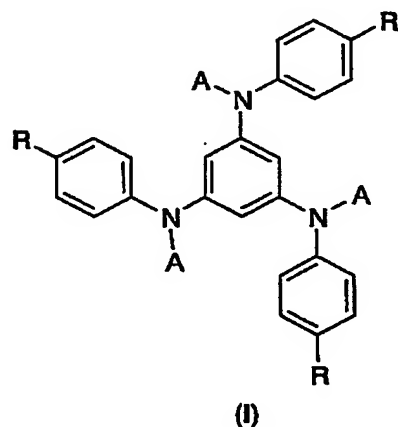
【書類名】要約書

【要約】

【課題】酸化電位が0.5～0.6V程度であり、酸化還元過程における可逆性にすぐれると共に、高いガラス転移温度を有し、更に、耐熱性にもすぐれるので、コーティング法や真空蒸着法によって、実用性にすぐれる有機半導体膜を容易に製膜することができ、しかも、常温以上の温度で自体で、即ち、バインダー樹脂の助けなしに、安定なアモルファス膜を形成することができるので、それ自体からなる安定で耐久性にすぐれる高性能な有機半導体膜を形成することができる新規な1,3,5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類を提供する。

【解決手段】一般式（I）

【化1】



（式中、Aはナフチル基、アントリル基又はフェナントリル基を示し、Rは炭素原子数1～6のアルキル基又は炭素原子数5又は6のシクロアルキル基を示す。

）

で表される1,3,5-トリス（アリアルアミノ）ベンゼン類。

【選択図】なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000005061]

| | |
|----------|----------------------|
| 1. 変更年月日 | 1999年11月 8日 |
| [変更理由] | 住所変更 |
| 住 所 | 兵庫県神戸市兵庫区明和通3丁目2番15号 |
| 氏 名 | バンドー化学株式会社 |

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [592212283]

| | |
|----------|------------------|
| 1. 変更新月日 | 1992年 8月27日 |
| [変更理由] | 新規登録 |
| 住 所 | 大阪府豊中市大黒町3丁目5番7号 |
| 氏 名 | 城田 靖彦 |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.